

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re application of : THE COMMISSIONER IS AUTHORIZED  
Hiroyuki FUJIMURA et al. : TO CHARGE ANY DEFICIENCY IN THE  
Serial No. NEW : FEES FOR THIS PAPER TO DEPOSIT  
Filed July 21, 2003 : ACCOUNT NO. 23-0975  
: Attn: APPLICATION BRANCH  
: Attorney Docket No. 2003\_1008A

METHOD AND APPARATUS FOR  
PRODUCING HIGH-PURITY HYDROGEN

CLAIM OF PRIORITY UNDER 35 USC 119

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

Applicants in the above-entitled application hereby claim the date of priority under the International Convention of Japanese Patent Application No. 2002-249754, filed July 25, 2002, as acknowledged in the Declaration of this application.

A certified copy of said Japanese Patent Application is submitted herewith.

Respectfully submitted,

Hiroyuki FUJIMURA et al.

By Michael S. Huppert  
Michael S. Huppert  
Registration No. 40,268  
Attorney for Applicants

MSH/kjf  
Washington, D.C. 20006-1021  
Telephone (202) 721-8200  
Facsimile (202) 721-8250  
July 21, 2003

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2002年 7月25日

出願番号

Application Number:

特願2002-249754

[ST.10/C]:

[JP2002-249754]

出願人

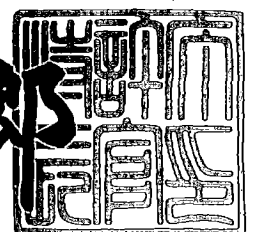
Applicant(s):

株式会社荏原製作所

2003年 5月20日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3037573

【書類名】 特許願

【整理番号】 EB2922P

【提出日】 平成14年 7月25日

【あて先】 特許庁長官殿

【発明者】

【住所又は居所】 東京都大田区羽田旭町 1 1 番 1 号 株式会社 荏原製作  
所内

【氏名】 藤村 宏幸

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県藤沢市本藤沢 4 丁目 2 番 1 号 株式会社 荏原  
総合研究所内

【氏名】 松村 知

【発明者】

【住所又は居所】 東京都大田区羽田旭町 1 1 番 1 号 株式会社 荏原製作  
所内

【氏名】 大下 孝裕

【発明者】

【住所又は居所】 東京都大田区羽田旭町 1 1 番 1 号 株式会社 荏原製作  
所内

【氏名】 伊藤 寛一

【特許出願人】

【識別番号】 000000239

【氏名又は名称】 株式会社荏原製作所

【代表者】 依田 正稔

【代理人】

【識別番号】 100091498

【弁理士】

【氏名又は名称】 渡邊 勇

【代理人】

【識別番号】 100092406

【弁理士】

【氏名又は名称】 堀田 信太郎

【代理人】

【識別番号】 100093942

【弁理士】

【氏名又は名称】 小杉 良二

【代理人】

【識別番号】 100109896

【弁理士】

【氏名又は名称】 森 友宏

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 026996

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9112447

【包括委任状番号】 0018636

【書類名】 明細書

【発明の名称】 高純度水素の製造方法及び装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 有機物の熱分解で生成する還元性ガスを固体酸化物電解質を隔膜として使用する高温水蒸気電解槽の陽極側に供給し、陽極側で酸素イオンを該還元性ガスと反応させて酸素イオンの濃度勾配を生じさせることにより、電解電圧を低減せしめることを特徴とする、高純度水素の製造方法。

【請求項 2】 熱分解原料の有機物を廃木材・生ごみなどのバイオマスとすることを特徴とする、請求項 1 に記載の高純度水素の製造方法。

【請求項 3】 廃木材・生ごみなどのバイオマスを熱分解する熱分解炉と、固体酸化物電解質を隔膜として使用する高温水蒸気電解槽と、熱分解炉からの生成ガスを電解槽の陽極側に供給する管路、および水蒸気を電解槽の陰極側に供給する管路などで構成したことを特徴とする、高純度水素の製造装置。

【請求項 4】 熱分解炉を熱分解流動層と燃焼流動層の 2 層で構成して両層間に熱媒体を循環せしめる 2 層循環方式とし、熱分解ガスへの燃焼ガスの混入を防いで高濃度の還元性ガスを電解槽に供給することを特徴とする、請求項 3 に記載の高純度水素の製造装置。

【請求項 5】 熱分解炉からの生成ガスを電解槽の陽極側に供給するガスの管路と電解槽の陰極側に供給する水蒸気の管路とにそれぞれ流量制御弁を設けて運転条件を最適制御することを特徴とする、請求項 3 に記載の高純度水素の製造装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

この発明は、有機物例えば廃木材・生ごみなどのバイオマス原料の熱分解で生成する水素や一酸化炭素を主成分とする熱分解ガスから、高純度の水素を回収する方法と装置とに関する。

【0002】

【従来の技術】

廃木材・生ごみなどのバイオマスを熱分解して得られる水素と一酸化炭素を主成分とする熱分解ガスは、水蒸気改質で水素化した後に水素を分離精製して燃料電池用燃料として有効に利用できる。しかし、最近実用化に近い技術として期待されている高分子電解質燃料電池では白金を触媒として使用しているために燃料の水素中に含まれる一酸化炭素をほぼゼロにする必要があり、高純度水素を得るためのガス改質・精製が煩瑣であり操作性や経済性が問題となる。また、熱分解ガスで発電した電力を利用する電解法では比較的簡単な構成で高純度の水素が得られるが、電力消費が極めて大きい。これに対し、800℃以上の高温で電解して水の分解に熱エネルギーを使って電解電圧を下げて電解電力の低減を図る高温水蒸気電解法があるが、それでもなお水の分解エネルギーの60%以上を電力で補う必要がある。この高温水蒸気電解法の改善策として、米国特許6,051,125では電解槽の陽極に天然ガスを供給して陽極側への酸素移動に要する電解電圧を低下せしめる方法が提案されているが、この方法は高価な天然ガスを消費する欠点があるのみならず天然ガスと酸素の反応で析出する炭素による電極の汚染を防止する対策が必要になるなどで、実用上問題がある。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

以上に鑑みこの発明は、電力や都市ガスなどの高価なユーティリティの消費を抑え、且つ比較的簡単な構成と運転障害の少ない方法により、バイオマスなどの熱分解ガスから高純度の水素を経済的に回収する方法と装置を提供することを課題とする。

【0004】

【課題を解決するための手段】

この発明は、①廃木材・生ごみなどのバイオマスの熱分解ガスが水素と一酸化炭素を主成分とする還元性ガスであること、②高温水蒸気電解槽の陽極側に①の還元性ガスを供給して陽極側で酸素イオンと反応させることにより電解電圧を大幅に下げ得ること、③水素と一酸化炭素を主成分とする①の還元性ガスの酸化反応では炭素の析出がなく電極を汚染する恐れがないこと、④熱分解炉を2層循環方式とすることによって熱分解ガスに燃焼ガスが混入せず還元性ガスの濃度が高

められ、電解槽やその関連装置をコンパクトにできるのみならず熱損失を減らせることなどの諸事実に着目し、熱分解ガス化炉と高温水蒸気電解槽との相乗効果により上記課題を解決するものである。

## 【0005】

すなわち、請求項1に記載の発明は、有機物の熱分解で生成する還元性ガスを固体酸化物電解質を隔膜として使用する高温水蒸気電解槽の陽極側に供給し、陽極側で酸素イオンを該還元性ガスと反応させて酸素イオンの濃度勾配を生じさせることにより、電解電圧を低減せしめることを特徴とする、高純度水素の製造方法である。

## 【0006】

また請求項2に記載の発明は、請求項1に記載の方法において、熱分解原料の有機物を廃木材・生ごみなどのバイオマスとすることを特徴とする、高純度水素の製造方法である。

## 【0007】

また請求項3に記載の発明は、廃木材・生ごみなどのバイオマスを熱分解する熱分解炉と、固体酸化物電解質を隔膜として使用する高温水蒸気電解槽と、熱分解炉からの生成ガスを電解槽の陽極側に供給する管路、および水蒸気を電解槽の陰極側に供給する管路などで構成したことを特徴とする、高純度水素の製造装置である。

## 【0008】

また請求項4に記載の発明は、請求項3に記載の装置において、熱分解炉を熱分解流動層と燃焼流動層の2層で構成して両層間に熱媒体を循環せしめる2層循環方式とし、熱分解ガスへの燃焼ガスの混入を防いで高濃度の還元性ガスを電解槽に供給することを特徴とする、高純度水蒸気の製造装置である。

## 【0009】

また請求項5に記載の発明は、請求項3に記載の装置において、熱分解炉からの生成ガスを電解槽の陽極側に供給するガスの管路と電解槽の陰極側に供給する水蒸気の管路とにそれぞれ流量制御弁を設けて運転条件を最適制御することを特徴とする、高純度水素の製造装置である。

## 【0010】

## 【発明の実施の形態】

発明の実施の形態を図1に示す実施例のフロー図を参照して説明する。

図1において、熱分解炉1は水蒸気6を流動化ガスとする熱分解流動層2と、空気7を流動化ガスとする燃焼流動層3、および熱媒体移動層4で構成されている。廃木材・生ごみなどのバイオマスを有機物原料とする原料5は熱分解流動層2に供給されて熱媒体（砂）の熱で熱分解され、ここで水素と一酸化炭素を主成分とする還元性の熱分解ガス8およびチャー類に分解される。生成したチャー類は熱媒体と共に熱媒体移動層4を通過して燃焼流動層3内で燃焼し、加熱昇温した熱媒体は熱媒体移動層4を通過して熱分解流動層2に還流する。燃焼流動層3から排出される燃焼排ガス12の廃熱は別途利用することができる。また熱分解流動層2の流動化ガスとして、水蒸気6に代えて熱分解ガス8の一部を循環して使用してもよい。生成した熱分解ガス8はガスの流量調整弁9を介してガスの管路10と管路11に配分制御され、管路10のガスは高温水蒸気電解槽13の陽極側15に供給され、管路11のガスはガス貯槽（図示せず）にプールされてガスエンジン発電などに利用される。

## 【0011】

高温水蒸気電解槽13は固体酸化物電解質の隔膜14によって陽極側15と陰極側16に仕切られており、電力17をAC-DC変換器18で直流に変換して電解槽に通電すると、陰極側16に供給された高温水蒸気19は電解作用で水素20と酸素21に分解される。酸素21は固体酸化物電解質の隔膜14を選択的に通過して電圧駆動力で陽極側15に移動し、水素20が回収される。陽極側15では酸素21が還元性の熱分解ガス8と反応して消費され、酸素イオンが濃度勾配を生ずるので水の分解に必要な電解電圧が下がり、電力消費量は大幅に低減される。陽極側15で生成する高温排ガス22は熱交換器23を経て低温排ガス24として系外に排出される。熱交換器23で製造された水蒸気6は前記流動化ガスとして利用でき、高温水蒸気19は流量調整弁26を介して管路27と管路28に配分制御され、管路27の高温水蒸気19は前記のように陰極側16に、また管路28の高温水蒸気は発電などに利用される。図中25は純水を示す。



## 【0012】

高温水蒸気電解槽13の実用化に際しては、(a)電解槽13の容積を可及的に小さくすること、(b)隔膜14の温度が800℃の高温に達するので熱損失を少なくすること、(c)還元性ガスとの反応で電極を汚染する炭素の析出がないこと、などが望まれる。これらの要件に対して、前記のように2層循環方式の熱分解炉1の熱分解ガス8には燃焼排ガス12が混入せず、例えば木質原料を約800℃で熱分解した場合の熱分解ガス8の組成は、水素約57%、一酸化炭素約26%、二酸化炭素約12%、と極めて高濃度の還元性ガスになる。従ってこのガスを受入れる電解槽13や熱交換器23の容積も小さくなり、廃熱や熱放射に基づく熱損失も少なくなる。また、還元性ガスは水素と一酸化炭素を主成分とするので酸素との反応で炭素析出に伴う電極汚染の恐れがない。

## 【0013】

電解に要する電力17は、低価格の夜間電力の他に、ガス管路11経由の余剰熱分解ガスによるガスエンジン発電や管路28経由の余剰高温水蒸気によるスチームタービン発電などの自家発電電力が用いられる。高温水蒸気電解槽13に供給される熱分解ガス8及び高温水蒸気19の量は、それぞれ流量調整弁9、26によって、電解槽13の運転温度(約800℃)の維持及び入力電力量と発生水素量に見合った最適条件での運転を維持するように、自動制御するとよい。

## 【0014】

## 【発明の効果】

本発明は以上説明したように構成されているので、以下に記載されるような効果を奏する。

## 【0015】

熱分解ガス化炉と高温水蒸気電解槽との相乗効果により、電力や都市ガスなどの高価なユーティリティの消費を抑え且つ比較的簡単な構成と運転障害の少ない方法で、低価値のバイオマスなどから高分子電解質燃料電池の燃料として利用可能な高純度の水素を経済的に回収できる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【図1】

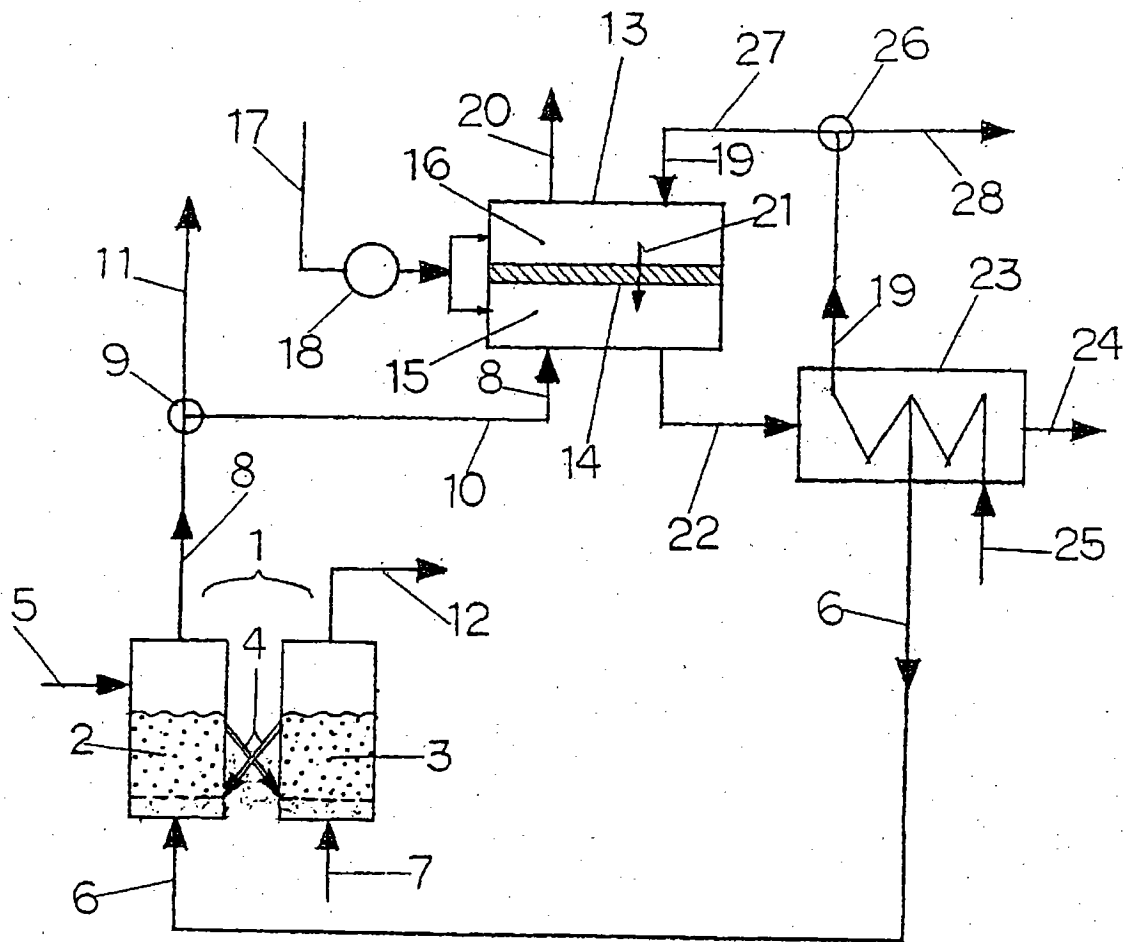
実施例のフロー図である。

【符号の説明】

- 1 熱分解炉
- 2 熱分解流動層
- 3 燃焼流動層
- 4 熱媒体移動層
- 5 原料
- 6 水蒸気
- 7 空気
- 8 熱分解ガス
- 9 ガスの流量調整弁
- 10、11、ガスの管路
- 12 燃焼排ガス
- 13 高温水蒸気電解槽
- 14 固体酸化物電解質の隔膜
- 15 陽極側
- 16 陰極側
- 17 電力
- 18 AC-DC変換器
- 19 高温水蒸気
- 20 水素
- 21 酸素
- 22 高温排ガス
- 23 熱交換器
- 24 低温排ガス
- 25 純水
- 26 水蒸気の流量調整弁
- 27、28 水蒸気の管路

【書類名】 図面

【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 電力や都市ガスなどの高価なユーティリティの消費を抑え且つ比較的簡単な構成と運転障害の少ない方法により、バイオマスなどの熱分解ガスから高純度の水素を経済的に回収する。

【解決手段】 バイオマスなどの有機物の熱分解で生成する還元性ガスを固体酸化物電解質を隔膜として使用する高温水蒸気電解槽の陽極側に供給し、電解槽の陽極側で酸素イオンを該還元性ガスと反応させて酸素イオンの濃度勾配を生じさせることにより、水の分解に要する電解電圧を下げて少ない電力消費で高純度の水素を得る。

【選択図】 図1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000000239]

1. 変更年月日 1990年 8月31日  
[変更理由] 新規登録  
住 所 東京都大田区羽田旭町11番1号  
氏 名 株式会社荏原製作所